

**PCT**WORLD INTELLECTUAL PROPERTY ORGANIZATION  
International Bureau

## INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

<b>(51) International Patent Classification <sup>6</sup> :</b> <b>B32B 3/00, 9/04, C07D 207/452, C08F 22/40, 283/04, C08G 73/00, C09J 5/02, D03D 3/00</b>	<b>A1</b>	<b>(11) International Publication Number:</b> <b>WO 98/10920</b> <b>(43) International Publication Date:</b> 19 March 1998 (19.03.98)
<b>(21) International Application Number:</b> PCT/US97/14568 <b>(22) International Filing Date:</b> 19 August 1997 (19.08.97)  <b>(30) Priority Data:</b> 08/711,982 10 September 1996 (10.09.96) US  <b>(60) Parent Application or Grant</b> <b>(63) Related by Continuation</b> US 08/711,982 (CON) Filed on 10 September 1996 (10.09.96)  <b>(71) Applicant (for all designated States except US):</b> QUANTUM MATERIALS, INC. [US/US]; 9938 Via Pasar, San Diego, CA 92126 (US).  <b>(72) Inventors; and</b> <b>(75) Inventors/Applicants (for US only):</b> HUSSON, Frank, D., Jr. [US/US]; 10404 Summerwood Court, San Diego, CA 92131 (US). NEFF, Benjamin [US/US]; 833 Fairway Court, Chula Vista, CA 91911 (US).	<b>(74) Agent:</b> REITER, Stephen, E.; Gray, Cary, Ware & Freidenrich, Suite 1600, 4365 Executive Drive, San Diego, CA 92121 (US).  <b>(81) Designated States:</b> AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, HU, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ARIPO patent (GH, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), Eurasian patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), European patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).  <b>Published</b> <i>With international search report.</i>	
<b>(54) Title:</b> MALEIMIDE CONTAINING FORMULATIONS AND USES THEREFOR  <b>(57) Abstract</b>  In accordance with the present invention, there are provided novel compositions based on a defined maleimide moiety. Invention compositions have excellent moisture resistance (and hence are much less prone to give rise to "popcorning"), excellent handling properties (i.e., generally existing as a fluid material which does not require the addition of solvent to facilitate the use thereof), and excellent performance properties (e.g., good dielectric properties).		

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号  
特表2001-501230  
(P2001-501230A)

(43) 公表日 平成13年1月30日 (2001.1.30)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テ-マコード\* (参考)

C 0 8 F 22/40

C 0 8 F 22/40

// C 0 8 F 283/12

283/12

C 0 8 G 73/00

C 0 8 G 73/00

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 34 頁)

(21) 出願番号 特願平10-513659  
(86) (22) 出願日 平成9年8月19日 (1997.8.19)  
(85) 翻訳文提出日 平成11年3月10日 (1999.3.10)  
(86) 国際出願番号 P C T / U S 9 7 / 1 4 5 6 8  
(87) 国際公開番号 W O 9 8 / 1 0 9 2 0  
(87) 国際公開日 平成10年3月19日 (1998.3.19)  
(31) 優先権主張番号 0 8 / 7 1 1 , 9 8 2  
(32) 優先日 平成8年9月10日 (1996.9.10)  
(33) 優先権主張国 米国 (U S)

(71) 出願人 クアンタム マテリアルズ, インコーポレ  
イテッド  
アメリカ合衆国92126 カリフォルニア州,  
サンディエゴ, ビア バサー 9938  
(72) 発明者 ハッソン, フランク, デイ., ジュニア.  
アメリカ合衆国92131 カリフォルニア州  
サンジェゴ, サマーウッド コート  
10404  
(72) 発明者 ネッフ, ベンジャミン  
アメリカ合衆国91911 カリフォルニア州  
チュラ ビスタ, フェアウェイ コート  
833  
(74) 代理人 弁理士 浅村 皓 (外3名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 マレイミド含有配合物とその用途

(57) 【要約】

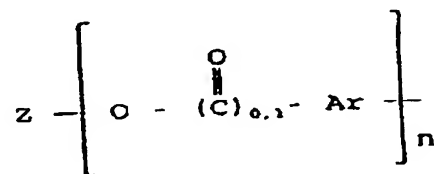
本発明では、限定したマレイミド成分に基づく新規な組成物を提供する。発明の組成物は、優れた耐湿性（それ故、「ポップコーン破裂」を起こす傾向が殆どない）、優れた取り扱い性能（即ち、通常液体材料として存在するので、溶剤を添加して使用を容易にする必要がない）、と優れた性能特性（良好な誘電特性）を有する。

## 【特許請求の範囲】

1. 熱硬化性樹脂組成物であって、
- (a) マレイミド、
- (b) 組成物の総重量を基準にして0.2～5重量%の少なくとも1種の硬化触媒、と
- (c) 所望により、少なくとも1種のポリシアネートエステルモノマーを含む基本配合物を含み、
- 前記マレイミドは、下記の構造式：

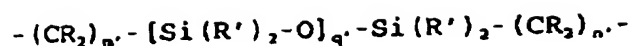


[式中、mは1、2または3であり、  
各Rは、水素または低級アルキルから独立して選ばれ、そして  
Xは、約12～約500個の炭素原子を有する、分枝鎖のアルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド種、  
下記の構造式：



(式中、nは1、2または3であり、  
各Arは、3～10個の炭素原子を有する1価、2価または3価の芳香族環、置換芳香族環、複素環式芳香族環、または置換複素環式芳香族環であり、  
Zは、そのバックボーンに約12～約500個の炭素原子を有する、分枝鎖のアルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド種である)  
で表される芳香族基、

下記の構造式：



(式中、各Rは、上記したように独立して定義され、各R'は水素、低級アルキルまたはアリール基から独立して選ばれ、m'は1～10であり、n'は1～10であり、そしてq'は1～50である)

で表されるシロキサン、

またはそれらの混合物

から選ばれる1価または多価遊離基である]

で表され、そして

前記ポリシアネートエステルは、下記の構造式：



[式中、qは1、2または3であり、

Yは、飽和直鎖または分枝鎖のフッ素化アルキル、フッ素化アルキレン、又はフッ素化アルキレンオキサイド(所望により、前記アルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド鎖上に置換基として、またはアルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド鎖のバックボーンの一部としてフッ素化飽和環状部分を含み、そして前記アルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド種は少なくとも6個の炭素原子を有し、好適には前記アルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド種は約12～約500個の炭素原子を有する高分子量分枝鎖種である)

、

下記構造式：



(式中、各Arは上記のように独立して定義され、Qはアルキレン、フッ素化アルキレン、シクロアルキレン、フッ素化シクロアルキレン、ビスシクロアルキレン、またはフッ素化ビスシクロアルキレンであり、rは0～6であり、そしてvは1

2または3である)

で表される芳香族部分、と

それらの2種またはそれ以上の混合物

から選ばれる]

で表されることを特徴とする前記組成物。

2. さらに、

(e) 組成物の総重量を基準にして0.1～10重量%の少なくとも1種のカップリング剤を含む、請求の範囲第1項に記載する組成物。

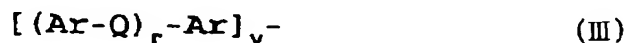
3. 所望により、さらに下記の添加成分：

カップリング剤、酸化防止剤、安定化剤、ブリード調節剤、1種またはそれ以上の充填材、反応性希釈剤、接着促進剤、柔軟剤、染料または顔料の、1種またはそれ以上を含有する、請求の範囲第1項に記載する組成物。

4. Xが、約20～約100個の炭素原子を有するアルキレンまたはアルキレンオキサイドである、請求の範囲第1項に記載する組成物。

5. Xが、10, 11-ジオクチル-1, 20-エイコシル遊離基である、請求の範囲第4項に記載する組成物。

6. Yが、下記構造式：



[式中、各Arは1価または2価のフェニルまたは置換フェニル環であり、Qはアルキレン、シクロアルキレン、またはビスシクロアルキレンであり、rは0、1または2であり、そしてvは2である]

で表される化合物である、請求の範囲第1項に記載する組成物。

7. 前記シアネートエステルが、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル)メタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル)エタン、2, 2-ビス(4-シアナトフェニル)プロパン、1, 3-ビス[2-(4-シアナトフェニル)プロピル]ベンゼン、ジシクロペンタジエンフェノールノボラックのシアネートエステル

、または1, 1-ビス(2, 6-ジメチル-4-シアナトフェニル)メタンから選ばれる、請求の範囲第1項に記載する組成物。

8. 前記マレイミド成分が、前記基本配合物の約1～99.8重量%の範囲であり、  
前記ポリシアネートエステルモノマーが、前記基本配合物の約0～98.8重量%の範囲であり、そして  
前記硬化触媒が、前記基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、  
そして、全ての場合の重量%が、基本配合物の全成分の総重量に基づいている、  
請求の範囲第1項に記載する組成物。

9. 前記マレイミド成分が、前記基本配合物の約1～30重量%の範囲であり、  
前記ポリシアネートエステルモノマーが、前記基本配合物の約65～98.8重量%の範囲であり、そして  
前記硬化触媒が、前記基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、  
そして、全ての場合の重量%が、基本配合物の全成分の総重量に基づいている、  
請求の範囲第1項に記載する組成物。

10. 前記マレイミド成分が、前記基本配合物の約95～約99.8重量%の範囲であり、  
前記ポリシアネートエステルモノマーが存在せず、そして  
前記硬化触媒が、前記基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、  
そして、全ての場合の重量%が、基本配合物の全成分の総重量に基づいている、  
請求の範囲第1項に記載する組成物。

11. 前記マレイミド成分が、前記基本配合物の約15～40重量%の範囲であり、  
前記ポリシアネートエステルモノマーが、前記基本配合物の約55～84.8重量%の範囲であり、そして  
前記硬化触媒が、前記基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、  
そして、全ての場合の重量%が、基本配合物の全成分の総重量に基づいている、  
請求の範囲第1項に記載する組成物。

12. 前記マレイミド成分が、前記基本配合物の約95～約99重量%の範囲であり、

前記ポリシアネートエステルモノマーが存在せず、そして

前記硬化触媒が、前記基本配合物の約1～約5重量%の範囲であり、  
そして、全ての場合の重量%が、基本配合物の全成分の総重量に基づいている、  
請求の範囲第1項に記載する組成物。

13. 所望により用いる希釈剤が、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン、トルエン、キシレン、塩化メチレン、テトラヒドロフラン、グリコールエーテル、メチルエチルケトン、エチレングリコールのモノアルキルまたはジアルキルエーテル、ポリエチレングリコール、プロピレングリコールまたはポリプロピレングリコールから選ばれる、請求の範囲第1項に記載する組成物。

14. 前記硬化触媒が、フリーラジカル開始剤、カチオン性触媒または遷移金属触媒である、請求の範囲第1項に記載する組成物。

15. フリーラジカル開始剤が、ペルオキシドまたはアゾ化合物から選ばれる、請求の範囲第14項に記載する組成物。

16. 前記カチオン性触媒が、オニウム塩、ヨードニウム塩またはスルホニウム塩から選ばれる、請求の範囲第14項に記載する組成物。

17. 前記遷移金属触媒が、キレートまたは石鹸の形態のニッケル、銅またはコバルトから選ばれる、請求の範囲第14項に記載する組成物。

18. カップリング剤が、珪酸エステル、アクリル酸金属塩、チタネートまたは共重合性基とキレート配位子を含有する化合物から選ばれる、請求の範囲第2項に記載する組成物。

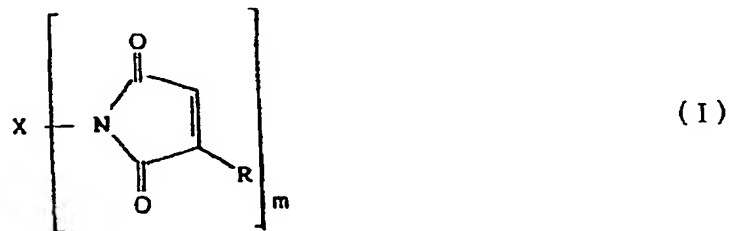
19. 請求の範囲第1項に記載する熱硬化性樹脂組成物の硬化した一部分により、第2の物品に永久的に接着された第1の物品を含む組立品。

20. 前記第1の物品と前記第2の物品が、積層回路基板の別々の層である、請求の範囲第19項に記載する組立品。

21. 表面に付着させたはんだマスクを有し、そして該はんだマスクが請求の範

図第1項に記載する組成物から作成された、回路基板を含む物品。

22. 改良された非気密電子パッケージであって、  
前記パッケージの各要素に対して、マレイミドベースの接着組成物を使用し、前記マレイミドが、下記の構造式：

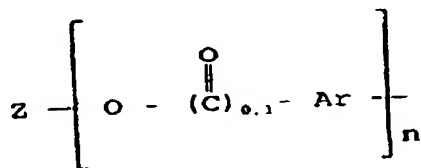


[式中、mは1、2または3、

各Rは、水素または低級アルキルから独立して選ばれ、そして

Xは、約12～約500個の炭素原子を有する、有枝鎖のアルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド種、

下記の構造式：



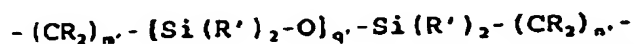
(式中、nは1、2または3、

各Arは、3～10個の炭素原子を有する1価、2価または3価の芳香族環、置換芳香族環、複素環式芳香族環、または置換複素環式芳香族環であり、

Zは、そのバックボーンに約12～約500個の炭素原子を有する、有枝鎖のアルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド種である)

で表される芳香族化合物、

下記の構造式：



(式中、各Rは、上記したように独立して定義され、各R'は水素、低級アルキルまたはアリール基から独立して選ばれ、m'は1～10であり、n'は1～10



であり、そして  $q'$  は 1 ～ 50 である)

で表されるシロキサン、

またはそれらの混合物

から選ばれる 1 価または多価遊離基である]

で表される化合物であることを特徴とする前記パッケージ。

23. 請求の範囲第 1 項に記載する組成物の一部分に封入された電子部品を含む物品。

**【発明の詳細な説明】****マレイミド含有配合物とその用途****発明の分野**

本発明は、電子産業に使用する部品の製造に関連する種々の応用に有効な配合物に関係するものである。特別な観点では、本発明は、積層板の製造に有効な配合物に関係する。別な観点では、本発明は、はんだマスクの製造に有効な配合物に関係する。さらに、別な観点では、本発明は、電子部品用の液体封入剤の製造に有効な配合物に関係する。さらに他の観点では、本発明は、非気密電子部品の製造に有効な配合物に関係する。

**発明の背景**

電子産業が進歩し、軽量部品の製造が増加するに従い、新規な開発材料は、製造業者に対して、性能改良の機会を多く与え、且つこのような部品の製造を容易にさせた。電子部品の製造に使用する材料には、プレプリグの製造に必要な樹脂（これらは多層プリント回路基板とプリント配線基板の製造に使用する）、はんだマスクの製造に使用する樹脂（これらは多層プリント配線基板のはんだ面積を限定する）、とグロブトップ（glob top）の製造に使用する樹脂（これらはマイクロ電子装置を環境から保護する）が含まれる。

多層プリント回路基板は、現在では、主として（a）マス積層技術と（b）ピン積層技術を利用して生産されている。これらの技術では、内層用のプリント回路基板（以下、「内層基板」という）を最初に作成する。この内層基板をプレプリグおよび銅箔または片面銅覆積層板と組み合わせ、そしてこの重層積層材料を積層して多層基板を製造する。この基板の両面は銅箔から構成される。この多層構造物を、スルーホール形成、外層プリント回路形成工程のような加工工程に移動する。

積層板に使用する樹脂の最初の製造は、通常化学製造業者が行い、これを加工可能な形態で取引に提供する。硬化剤または触媒、同様に希釈剤、流動助剤、防火材料、およびその他の変性樹脂の添加は、ユーザーが実施する。これは、用途

に応じて特注の形で実施され、または配合物の事前の反応が起きないことを確認

して行われる。

触媒を配合した樹脂系を浸漬タンクに入れ、ガラス織布に浸透させる。湿潤塗布した織布を計量ロール間でしごいて、一定量の樹脂系を残す。この織布はトンネル乾燥器を通過させて蒸発成分（例えば、存在する溶剤）を除去し、そして通常は反応させて予定した分子量の樹脂を得る。この樹脂は、積層作業における適度の流動性を保証するものである。

塗布した織布がトンネル乾燥器を通過した後には、樹脂は十分に高Tgとなつて、取り扱いが可能になる。この段階で、樹脂はプレプリグと呼ばれ、シート状に切断して、あるいはロール状で保存可能になる。ある種の配合物は冷蔵保存を必要とするが、しばしば貯蔵は室温で行う。

切断したプレプリグシートを積層プレスの研磨鋼板の間に置く。硬化した材料を用いてプリント回路を作成する場合には、材料の両面に銅箔を置く。そうでない場合には、分離シートまたはルブリカントを用いて、研磨鋼板から硬化積層板を取り除く。

硬化が起きる条件は、樹脂のタイプ、積層板の厚みやその他の要因で変わる。樹脂の硬化は、例えば、1750C、250～1,000psi、およびその温度で30～60分間行い、その後に冷却する。ある種の樹脂（例えば、耐熱性ポリマー）では、完全硬化に2000Cまたはそれ以上の温度を必要とする。1750C以上の温度では、蒸気加熱プレスは十分に機能しないので、時にはこの温度における部分硬化が有効であり、残部の硬化はオープン中でより高温度で実施する。このような方法の下で、製品のそりが限定的に発生する。積層材料および組み立て基板の寸法安定性が一層重要になり、趨勢は高Tg材料に向かい、減圧工程で積層加工を行い、製造公差条件を満たして水分吸収を減少させる。

高信頼性プリント回路積層板の特性は、積層板の製造に使用する樹脂材料にシランカップラーを添加することにより改善できる。カップラーの添加は、得られた複合物を無管理の環境下で使用できるようにすることが狙いであるが、多くの先行技術の材料は、高い湿度と高い電圧ストレスの条件下では不成功である。その結果は、ガラス表面に沿って被覆した銅ショートフィラメントの発生である。

これらのフィラメントは1つの回路から他の回路に入り込んでいる。この現象を加速する要因は、イオン性の汚染物質、湿度、電圧と温度であるから、意図した用途に対して、選択した樹脂材料とカップラーの適性を調べる主要な試験は、高湿度における相互接続ライン間または電圧ストレスが存在するホール間の電気抵抗である。

狙いどおりに仕上がったときに、カップラーはガラスと硬化樹脂を強力に結合して、複合体として機能するようになるが、機械的異方性は存在する。この複合体の残留応力は寸法安定性に影響を与える。これらの応力の原因の1つは、ガラス繊維自身にある。ひずんだ（マシン方向に）ガラス繊維は、含浸工程の張力により伸ばされるが、横糸の縮れは実際に増加する。積層工程でこの両者は伸ばされる。反復加圧は、硬化樹脂をそのT<sub>g</sub>以上の状態にして、軟化した材料は、ガラス繊維を平衡状態に戻し、寸法変化が起きる。硬化中に積層板の表面全体に温度変化が生じると、樹脂は、すでに回路形成した基板上の要素および穿孔ホール周辺を満たすように流れ、全体が応力に誘導される寸法変化を生み出す。ガラス織布の直交配置された交互の層は、ガラス織布の張力を相殺するが、多くの場合、このような要因の追跡は容易ではない。

その結果、寸法変化とその要因間で、詳細な相関関係が欠如しており、最も近似的なモデルは、変形、即ち直交異方性材料の収縮、そり、ねじれ、やその他の高次元のひずみ作用を仮定している。それにも拘わらず、一般的な効果は認められており、多層基板を製造するために用いる複雑な工程順序を、高精細測定技術から導いたコンピュータ近似モデルを基にして、監視し管理している。これによって、各層中の要素が、複合体中の他の要素と位置合わせされることを保証している。水分と温度が、論じた要因に比較して大きく寸法に影響を与えるので、プレプリグ、コア、と準複合体は臨界的手段で温度および湿度安定化が行われる。

電子産業界における樹脂の他の用途は、はんだマスクの製造用である。はんだマスクは、プラスチックパッケージ中ではんだの過剰流動を防ぐために使用する。使用材料は、パッケージの物理的、化学的、機械的および環境関連特性と整合が必要である。はんだマスクは、基本的には、プリント配線基板上で用い、製作

を助け、機械はんだ後の修正の手間を減少させ、はんだ消費量を減らし、さらに  
回

路主要部分を機械的に保護する狙いをもつものである。

業界で使用されるはんだマスクの主要なタイプは、「液状光画像形成性」はんだマスクである。このタイプのはんだマスクの用法には、3つの主要な方法、流体スクリーンコーティング、カーテンコーティングとスプレーコーティングがある。夫々の方法は、長所と欠点がある。例えば、スクリーンコーティングは、材料使用面では効率的であるが、工程中にスルーホールを塞ぐ可能性がある。従って、このホールは次工程で穿孔しなければならない。また、カーテンコーティングも、有効であるが、一度に基板の片面しかコーティングできないため、工程に時間がかかりすぎる。カーテンコーティングは、大小の応用を完璧にこなす最良の方法であるが、この技術は、実質的な材料損失を招く（例えば、10～30%の無駄）。

電子産業界における樹脂のその他の用途は、液状封入剤（「グロブトップ」ともいう）であり、一部の樹脂材料で部品を封入し、ある種のストレスと環境暴露から部品を保護するために用いる。産業界の装置信頼性に対する恒常的に増大する要求を満たすために、封入剤用の材料は増加する厳重な性能要件を満足しなければならない。このような要件には、優れた耐湿性、イオンの純度、低誘電率と優れた温度特性がある。これらの特性が欠如するとき、特に水分とイオン性不純物があれば、腐食（そして究極的には装置の故障）が起き易い。

電子産業界における樹脂のさらに他の用途は、非気密電子パッケージの製造である。これらのパッケージの例には、ボールグリッドアレー（BGA）組立品、スーパーボールグリッドアレー、ICメモリーカード、チップキャリアー、ハイブリッド回路、チップオンボード、マルチチップモジュール、ピングリッドアレー等が含まれる。このような構造物において、組立作業中の取り扱いおよび完成部品の信頼性の双方の関係で、耐湿性が重要な要件となる。例えば、組立作業中の水分の吸収は、しばしば「ポップコーン破裂」（はんだ戻り温度に加熱した場合、時に吸収水分を急激に放出）につながる。それ故、非気密電子パッケージの

製造に使用できる耐湿性樹脂の開発は、業界にとって大きな利益になる。

従って、業界で現在でも必要とされるものは、良好な作業性（例えば、通常の加工条件で流体である）と良好な性能特性（例えば、良好な接着力、耐湿性な

ど）を有する材料である。

#### 発明の概要

本発明に従い、特定のマレイミド化合物を基にした化合物が、優れた耐湿性（「ポップコーン破裂」を起こさない）、優れた取り扱い性（即ち、通常流動性の材料として存在し、取り扱い易くするために溶剤添加を必要としない）、そして優れた性能特性（例えば、良好な誘電特性）を持っていることが判明した。

#### 発明の詳細な説明

本発明では、下記の化合物を含む基本配合物：

- (a) マレイミド、
- (b) 熱硬化性樹脂組成物の総重量を基準にして0.2～5重量%の少なくとも1種の硬化剤、と
- (c) 所望により、少なくとも1種のポリシアネートエステルモノマーから成る熱硬化性樹脂組成物を提供する。

本発明の実施に使用するマレイミドは、下記の構造式：

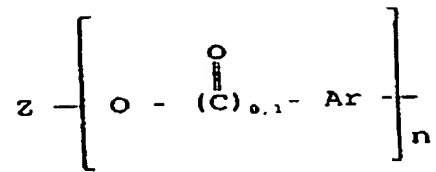


〔式中、mは1、2または3、

各Rは、水素または低級アルキルから独立して選ばれ、そして

Xは、約12～約500個の炭素原子を有する、有枝鎖のアルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド種、

下記の構造式：



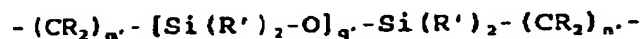
(式中、nは1、2または3、

各Arは、3～10個の炭素原子を有する1価、2価または3価の芳香族環、置換芳香族環、複素環式芳香族環、または置換複素環式芳香族環であり、

Zは、そのバックボーンに約12～約500個の炭素原子を有する、有枝鎖のアルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド種である)

で表される芳香族化合物、

下記の構造式：



(式中、各Rは、上記したように独立して定義され、各R'は水素、低級アルキルまたはアリール基から独立して選ばれ、m'は1～10であり、n'は1～10であり、そしてq'は1～50である)

で表されるシロキサン、

またはそれらの混合物

から選ばれる1価または多価遊離基である]

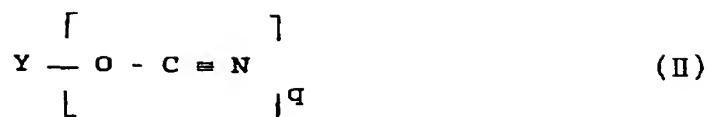
で表される化合物である。

発明の組成物の優れた取り扱い特性は注目に価する。この組成物は、好ましくも低粘度であって、分配作業を容易にする。通常粘度は約10～約12,000cpsの範囲であり、そして約10～約2,000cpsの範囲の粘度が現状好適である。

発明の組成物であるマレイミド成分に関して、ここで使用するのに現在適している化合物は、Xが約20～約100個の炭素原子を有するアルキレンまたはアルキレンオキサイド種の化合物である。特に好適な化合物は、Xが10,11-ジオクチル-1,20-エイコシル遊離基である化合物である。

発明の組成物にポリシアネートエステルを含む場合には、以下に説明するよう

な構造式II：



[式中、qは1、2または3であり、

Yは、飽和直鎖または有枝鎖のフッ素化アルキル、フッ素化アルキレン、フッ素化アルキレンオキサイド（所望により、前記アルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド鎖上に置換基として、またはアルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド鎖のバックボーンの一部としてフッ素化飽和環状成分を含み、そして前記アルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド種は少なくとも6個の炭素原子を有し、好適には前記アルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド種は約12～約500個の炭素原子を有する高分子量有枝鎖種である）、

下記構造式：



(式中、各Arは上記のように独立して定義され、Qはアルキレン、フッ素化アルキレン、シクロアルキレン、フッ素化シクロアルキレン、ビスシクロアルキレン、またはフッ素化ビスシクロアルキレンであり、rは0～6であり、そしてvは1、2または3である)

で表される芳香族成分、と

それらの2またはそれ以上の混合物

から選ばれる]

で表される化合物が、ここでは使用できる。

本発明を実施する時に使用する現在好適なポリシアネートエステルは、構造式II：

[式中Yは、



(式中、各Arは1価または2価フェニルまたは置換フェニル環であり、Qはア



ルキレン、シクロアルキレンまたはビスシクロアルキレンであり、 $r$ は0、1または2であり、そして $v$ は2である)

である]

で表される疎水性化合物である。

本発明で使用するシアネートエステルモノマーは、2またはそれ以上の環形成性シアネート ( $-O-C\equiv N$ ) 基を含有し、該基は加熱により環状三量体化して置換トリアジン環を形成する。シアネートエステルモノマーの硬化反応時には、残留化合物または揮発性副生物を生成しないので、硬化反応は付加重合と言える。

本発明で利用できる適切なポリシアネートエステルモノマーには、例えば、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル)メタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル)エタン、2, 2-ビス(4-シアナトフェニル)プロパン、1, 3-ビス[2-(4-シアナトフェニル)プロピル]ベンゼン、ジシクロペンタジエンフェノールノボラックのシアネートエステル、1, 1-ビス(2, 6-ジメチル-4-シアナトフェニル)メタンなどがある。本発明に従い使用するポリシアネートエステルモノマーは、適切な2価フェノールとハロゲン化シアンを酸受容体の存在下で反応させて容易に作成できる。

当業者であれば容易に認識できるように、本発明の組成物の製造には、種々の硬化触媒が使用できる。勿論のこと、使用する好適な触媒は、用いるモノマービヒクルにより左右される。例えば、フリーラジカル機構で硬化するこれらのモノマービヒクルの場合には、ペルオキシエステル、ペルオキシ炭酸塩、ヒドロペルオキシド、アルキルペルオキシド、アリールペルオキシド、アゾ化合物などのようなフリーラジカル開始剤が使用できる。

カチオン及び/又はアニオン重合で硬化するモノマービヒクルの場合には、有機塩基、カチオン性触媒、遷移金属触媒などが使用できる。ここで使用できる代表的な有機塩基には、第3級アミン(例えば、 $N,N$ -ジメチルアニリン、 $N,N$ -ジメチルトルイジン、 $N,N$ -ジメチル- $p$ -アニシジン、 $p$ -ハロゲノ- $N,N$ -ジメチルアニリン、2- $N$ -エチルアニリンエタノール、トリ- $n$ -ブチルアミン、ピリジン、キノリン、 $N$ -メチルモルホリン、トリエタノールアミ

ンなど)、イミダゾール類(例えば、イミダゾールまたはベンズイミダゾール)、フェノール類(フェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシノール、フロログルシンなど)がある。

ここで使用できる代表的なカチオン性触媒には、オニウム塩、ヨードニウム塩、スルホニウム塩などがある。

ここで使用できる代表的な遷移金属触媒には、キレート、石鹼のような形態の、亜鉛、錫、マグネシウム、ニッケル、銅、コバルトなどがある。このような化合物の例として、ナフテン酸鉛、ステアリン酸鉛、ナフテン酸亜鉛、オレイン酸錫、ジブチル錫マレエート、ナフテン酸マンガン、ナフテン酸コバルト、樹脂酸鉛、 $ZnCl_2$ 、 $SnCl_4$ 、 $AlCl_3$ のような塩化物などがある。

他の観点では、発明の組成物は、所望により1種またはそれ以上の下記の追加成分：酸化防止剤、ブリード調節剤、1種またはそれ以上の充填材、不活性(非反応性)希釈剤、反応性希釈剤、カップリング剤、接着促進剤、柔軟剤、染料、顔料などを、さらに含有してもよい。

本発明の実施に当たり使用できる酸化防止剤には、ヒンダードフェノール類(例えば、BHT(ブチル化ヒドロキシトルエン)、BHA(ブチル化ヒドロキシアニソール)、TBHQ(tert-ブチルヒドロキノン)、2,2'-メチレンビス(6-tert-ブチル-p-クレゾール)など)、ヒンダードアミン類(例えば、ジフェニルアミン、N,N'-ビス(1,4-ジメチルペンチル-p-フェニレン)ジアミン、N-(4-アニリノフェニル)メタクリルアミド、4,4'-ビス( $\alpha$ , $\alpha$ -ジメチルベンジル)ジフェニルアミンなど)、亜リン酸化合物などがある。酸化防止剤の使用量は、通常、基本配合物の重量に対して、約100~2000ppmの範囲である。

本発明の実施に当たり使用できる耐ブリード剤には、カチオン界面活性剤、第3級アミン、ターシャリーホスフィン、両性界面活性剤、多官能性化合物など、及びそれらの2またはそれ以上の混合物がある。本発明の実施に当たり使用するブリード調節剤の量は広範囲に変更でき、通常、基本配合物の重量に対して、約0.1~約10重量%の範囲であることを、当業者は理解している。

電気絶縁性を有する樹脂材料の製造に伝統的に使用される充填材は、例えば、

窒化アルミニウム、窒化ホウ素、アルミナ、二酸化珪素、ポリ四弗化エチレンなどのような非導電性材料である。本発明の組成物に充填材を含有するか否かは、意図する最終用途に依存していることを、当業者は認識している。例えば、はんだマスクに使用する組成物を製造する場合には、通常充填材は含まれない。反対に、液状封入剤として使用する組成物を製造する場合には、相当量の充填材（通常、基本配合物の重量に対して、約10～約75重量%の範囲）を含有することが望ましい。

本発明の実施において、不活性希釈剤の使用を排除するものではないが、希釈剤の可能性のある有害な影響、例えば、溶剤の除去に起因する空隙形成、蒸発溶剤の環境への影響、物品の表面におけるガス抜き分子の再付着など、を避けるために実質的に無溶剤であることが通常は望ましい。使用する場合には、適切な不活性希釈剤には、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン、トルエン、キシレン、塩化メチレン、テトラヒドロフラン、グリコールエーテル、メチルエチルケトン、エチレングリコールのモノアルキルまたはジアルキルエーテル、ポリエチレングリコール、プロピレングリコール、ポリプロピレングリコールなどが含まれる。使用する場合、不活性希釈剤の量は、基本配合物の重量に対して、約10～約40重量%の範囲である。

本発明の実施に当たり使用できる反応性希釈剤は、ここに記載するマレイミドベースの配合物と組み合わせて、熱硬化性樹脂組成物を形成できる全ての反応性希釈剤を含む。このような反応性希釈剤には、1官能性と多官能性アルコールのアクリレートとメタクリレート、エチレン性不飽和化合物、スチレン性モノマー（即ち、ビニルベンジルクロライドと1、2または3官能性ヒドロキシ化合物との反応から導かれるエーテル）などがある。使用する場合、反応性希釈剤の量は、基本配合物の重量に対して、通常約5～約25重量%の範囲である。

特殊な観点では、本発明の組成物は、所望によりさらに、組成物の総重量を基準にして、約0.1～約10重量%の範囲の少なくとも1種のカップリング剤を含有してもよい。本発明の実施に当たり使用できるカップリング剤には、珪酸エステル、アクリル酸金属塩、チタネートまたは共重合性基とキレート配位子を含有する化合物がある。

本発明の実施に当たり使用できる接着促進剤は、ペンダント酸基またはレイテント酸基をもち、接着力を増大できるポリマーを含む。その例には、20%マレイン酸化したリコンR-130（リコンレジン社、グラント・ジャンクション社）、接着力増大のために表面と反応する無水基をもつポリブタジエンがある。使用する場合、接着促進剤の量は、基本配合物の重量に対して、通常約5～約30重量%の範囲である。

本発明の実施に当たり使用できる柔軟剤には、配合物のT<sub>g</sub>を下げる有枝鎖ポリアルカンまたはポリシロキサンがある。この材料の例には、前記したリコンR-130のようなポリブタジエンがある。使用する場合、柔軟剤の量は、基本配合物の重量に対して、通常約15～約60重量%の範囲である。

本発明の実施に当たり使用できる染料には、ニグロシン、オラゾールブルーGN、フタロシアニン類などがある。使用する場合、比較的少量の有機染料（即ち、約0.2重量%以下の量）でコントラストが得られる。

本発明の実施に当たり使用できる顔料には、着色の目的で配合物に単独添加する全ての微粒子状材料、例えば、カーボンブラック、金属酸化物（例えば、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、酸化チタン）などがある。存在する場合、顔料の量は、基本配合物の重量に対して、通常約0.5～約5重量%の範囲である。

当業者であれば既に理解しているように、発明の組成物を製造するために使用する種々の成分の量は、広範囲に変更できる。例えば、マレイミド成分の量は、通常、基本配合物の約1～99.8重量%の範囲であり、一方、ポリシアネートエステルモノマーの量は、通常、基本配合物の約0～98.8重量%の範囲であり、そして硬化触媒は、通常、基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、ここで用いる重量%は、基本配合物の全成分の総重量に基づいている。

本発明の他の実施態様に関して、ここに記載する基本配合物の接着特性により第2の物品に永久的に接着された第1の物品を含む組立品が提供される。本発明に従い製造するこの種の物品の例には、積層回路基板（即ち、第1の物品と第2の物品は別々の層から成る積層構造である）、プリント配線基板などがある。

積層板の製造に使用するベース材料の例には、E-ガラス、S-ガラス、SII-ガラス、D-ガラス、クォーツガラスなどのような種々のガラス織布、アルミ

ナ紙のような他の無機織布、全芳香族ポリアミド、ポリイミド、フッ素化プラスチック、ポリ（フェニレンサルファイド）、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルイミド、液晶ポリエステル樹脂などのような超耐熱性樹脂から成る織布、前記無機材料と前記超耐熱性樹脂の混合物から成る複合糸を用いて得た織布、および上記材料の適切な混合物から成る材料を含む織布がある。

ここに記載するようなマレイミド含有配合物を積層板の製造に使用する場合には、マレイミド成分の量は、通常、基本配合物の約1～30重量%の範囲であり、一方、ポリシアネートエステルモノマーの量は、通常、基本配合物の約65～98.8重量%の範囲であり、そして硬化触媒は、通常、基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、ここで用いる重量%は、基本配合物の全成分の総重量に基づいている。

本発明のさらに別の実施態様に関して、はんだマスクを付着させた回路基板を含む物品が提供され、前記はんだマスクは請求の範囲1に記載される組成物から製造される。はんだマスクは電子産業界では広く使用され、当業者には周知である。このように、当業者は、このような用途に対して、ここに説明する組成物の用法を容易に決めることができる。

従って、ここに説明するマレイミド含有配合物をはんだマスクの製造に使用する場合には、マレイミド成分の量は、通常、基本配合物の約95～99.8重量%の範囲であり、一方、ポリシアネートエステルモノマーは、通常添加しない。硬化触媒は、通常、基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、ここで用いる重量%は、基本配合物の全成分の総重量に基づいている。

本発明のさらに別の観点に関して、前記のマレイミドベースの組成物の一部に封入れた電子部品を含む物品が提供される。本発明のこの特殊な応用のために、充填材を含有させて粘弾性的特性を高めることが望ましい。

ここに説明するようなマレイミド含有配合物をグロブトップの製造に使用する場合には、マレイミド成分の量は、通常、基本配合物の約15～40重量%の範囲であり、一方、ポリシアネートエステルモノマーの量は、通常、基本配合物の約55～約84.8重量%の範囲であり、そして硬化触媒は、通常、基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、ここで用いる重量%は、基本配合物の全

成分の総重量に基づいている。

これに代わり、ここに説明するようなマレイミド含有配合物をグロブトップの製造に使用する場合に、主要素としてマレイミド含有配合物を使用でき、即ち、マレイミド成分の量は、通常、基本配合物の約95～約99重量%の範囲であり、そして硬化触媒は、通常、基本配合物の約1～約5重量%の範囲であり、ここで用いる重量%は、基本配合物の全成分の総重量に基づいている。

本発明の他の観点に従い、改良した非気密電子パッケージが提供され、この改良は、パッケージの各要素に対して、ここに説明するマレイミドベースの組成物を使用することを含み、即ちここで使用するマレイミドは上記の構造式Iを有する化合物である。

当業者は理解するところであるが、ここに説明した疎水性のマレイミドベース樹脂を用いたパッケージの製造から、多くの各種電子パッケージは利益を得ている。このようなパッケージの例には、ボールグリッドアレー、スーパーボールグリッドアレー、ICメモリーカード、チップキャリアー、ハイブリッド回路、チップオンボード、マルチチップモジュール、ピングリッドアレー、チップサイズパッケージ(CSPs)などがある。

本発明は、以下の実施例を参考にしてより詳細に説明を行うが、この実施例に限定するものではない。

#### 実施例1 樹脂からプレブリグを製造する方法

本発明に従い、以下に示すように、ビスマレイミド含有配合物を使用してプレブリグを製造できる。

##### (a) 配合

シアネートエステル	85部
ビスマレイミド	15部
Co(AcAc)	0.3部

(b) シアネートエステルを加熱して所望の粘度を得る(約85℃)。

(c) 同時にCo(AcAc)とビスマレイミドを室温で混合する。

(d) シアネートエステルにビスマレイミド/Co(AcAc)混合物を添加する。

(e) シアネートエステル/ビスマレイミド混合物を攪拌して均一にする。

(f) 通常のホットメルト法によりプレプリグを製造する。樹脂を80～110℃で普通に溶解する。

## 実施例2 異なるビスマレイミドに対する水分吸収の比較

2種のビスマレイミド配合物を作成し、それらの水分吸収特性を調べた。

### [配合A]

BMI-X<sup>\*</sup> 99部

ジキュミルペルオキシド 1部

\*BMI-Xは、10, 11-ジオクチル-1, 20-エイコサンのビスマレイミド誘導体である。

---

### [配合Aの作成]

ビスマレイミド(BMI-X)とジキュミルペルオキシドを室温で混合して、ジキュミルペルオキシドを溶解させた。10gを秤量し10zのガラスビンに入れた。そしてビン脱ガスした。泡の放出が終了した後に、ビン175℃のオーブンに約45分間入れた。この処理によって、サンプルは硬化したと判断される。幾つかのサンプルを作成し、ビンから取り出して、試験のために4等分した。

### [配合B]

4, 4'-ビスマレイミドフェニルメタン 100部

### [配合Bの作成]

10gのビスマレイミド、4, 4'-ビスマレイミドフェニルメタンを秤量し10zのガラスビンに入れた。ビン175℃のオーブンに約45分間入れた。この処理によって、サンプルは硬化したと判断される。幾つかのサンプルを作成し、ビンから取り出して、試験のために4等分した。

### [試験と結果]

サンプルAとBの各4等分の6個選択した。各4等分の空隙とクラックが無いことを確認した。各サンプルを秤量し、ホルダーに入れた。そして、ホルダーを加圧加熱容器に入れた。サンプルを2気圧、121℃で処理し、一定の時間間隔で重量増加を測定した。結果を表1に示す。

表1

<u>ビスマレイミド</u>	<u>重量増加%</u>			
	0時間	48時間	96時間	144時間
BMI-X*	0.0	0.37	0.2	0.17
4, 4'-ビスマレイミド フェニレンメタン	0.0	3.59	6.60	7.40

\*BMI-Xは、10, 11-ジオクチル-1, 20-エイコサンのビスマレイミド誘導体である。

表1に示した結果は、本発明に従ってマレイミドから作成した樹脂は、先行技術に従って作成した低疎水性マレイミド（4, 4'-ビスマレイミドフェニレンメタン）より実質的に高耐湿性である。

#### 実施例3 シアネートエステル吸湿特性に及ぼす特定ビスマレイミドの影響

下記の3配合物を作成し、マレイミドとシアネートエステルの組み合わせの吸湿特性を試験した。全例に使用したマレイミドは10, 11-ジオクチル-1, 20-エイコサンのビスマレイミド誘導体であり、そして全例に使用したシアネートエステルはジシクロペンタジエンフェノールノボラックのシアネートエステルであった。

##### [配合C]

シアネートエステル	100部
Co (AcAc)	0.3部

##### [配合D]

シアネートエステル	85部
BMI-X	15部
Co (AcAc)	0.3部

##### [配合E]

シアネートエステル	70部
BMI-X	30部
Co (AcAc)	0.3部



・BMI-Xは、10, 11-ジオクチル-1, 20-エイコサンのビスマレイミド誘導体である。

ミド誘導体である。

配合DとEは、実施例1に記載したように作成した。配合Cは、シアネートエステル成分を加熱して液状にし（90℃）、得られたものを触媒（即ち、Co（AcAc））と混合して作成した。

配合C、DとEを夫々テフロン型に注入した。型には、9個のキャビティがあり、各キャビティは7/16インチの直径、1/4インチの深さであった。この型を脱ガス装置に入れた。脱ガス中に、樹脂が型から出てくるが、材料の使用法が指摘された。脱ガスが完了した後に、この型を200℃でオープンに1時間入れた。サンプルを型から取り出し、硬化中に生じた欠陥部を適切な研磨剤、例えばサンドペーパーを用いて取り除いた。5個のサンプルを150℃で16時間、後硬化し、秤量し、そして加圧加熱容器（2気圧、121℃）に入れた。そして、一定の時間間隔で重量増加を測定した。

表2

<u>ビスマレイミド</u>	<u>重量増加%</u>			
	0時間	23時間	48時間	73時間
なし	0.0	0.96	1.36	1.45
15%BMI-X	0.0	0.88	1.17	1.17
30%BMI-X	0.0	0.93	1.12	1.15

\*BMI-Xは、10, 11-ジオクチル-1, 20-エイコサンのビスマレイミド誘導体である。

表2に示された結果は、本発明によるマレイミドとシアネートエステルの組み合わせから作成した樹脂は、シアネートエステル単独に比較して耐湿性が改良されていることを強調している。

幾つかの好適な実施態様を参考にして本発明を詳細に説明したが、変性および

変更が、説明と請求の範囲に記載する精神と範囲内で可能であることを理解すべきである。

【手続補正書】特許法第184条の8第1項

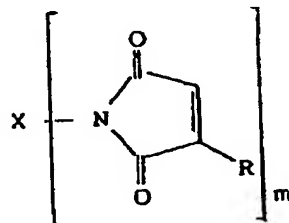
【提出日】平成10年7月23日（1998. 7. 23）

【補正内容】

請求の範囲

1. 熱硬化性樹脂組成物であって、
  - (a) マレイミド、
  - (b) 組成物の総重量を基準にして0. 2～5重量%の少なくとも1種の硬化触媒、
  - (c) 所望により、少なくとも1種のポリシアネートエステルモノマー
  - (d) 所望により、不活性または反応性希釈剤、と
  - (e) 所望により、組成物の総重量を基準にして10重量%までの少なくとも1種のカップリング剤、
 を含む基本配合物を含み、

前記マレイミドは、下記の構造式：



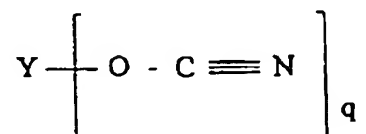
[式中、m=2または3、

各Rは、水素または低級アルキルから独立して選ばれ、そして

Xは、約30～約500個の炭素原子を有する、分枝鎖のアルキルまたはアルキレン種である]

で表され、

前記ポリシアネートエステルは、下記の構造式：



[式中、qは1、2または3であり、

Yは、飽和直鎖または有枝鎖のアルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイ

ド(所望により、前記アルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド鎖上に置換基として、またはアルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド鎖のバックボーンの一部として飽和環状部分を含み、そして前記アルキル、アルキレンまたはアルキレンオキサイド種は少なくとも6個の炭素原子を有する)、

下記構造式：



(式中、各Arは、3～10個の炭素原子を有する1価、2価または3価の芳香族環、置換芳香族環、複素環式芳香族環または置換複素環式芳香族環であり、Qはアルキレン、シクロアルキレンまたはビスシクロアルキレンであり、rは0～6であり、そしてvは1、2または3である)

で表される芳香族部分、と

それらの2種またはそれ以上の混合物

から選ばれる]

で表されることを特徴とする前記組成物。

2. さらに、酸化防止剤、安定化剤、ブリード調節剤、1種またはそれ以上の充填材、接着促進剤、柔軟剤、染料または顔料の1種またはそれ以上を含有する、請求の範囲第1項に記載する組成物。

3. Xが、10, 11-ジオクチル-1, 20-エイコシル遊離基である、請求の範囲第1項に記載する組成物。

4. Yが、下記構造式：



[式中、各Arは1価または2価のフェニルまたは置換フェニル環であり、Qはアルキレン、シクロアルキレンまたはビスシクロアルキレンであり、rは0、1または2であり、そしてvは2である]

で表される化合物である、請求の範囲第1項に記載する組成物。

5. 前記シアネートエステルが、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル)メタン、1, 1-ビス(4-シアナトフェニル)エタン、2, 2-ビス(4-シアナ

トフェニル)プロパン、1, 3-ビス[2-(4-シアナトフェニル)プロピル]ベンゼン、ジシクロペンタジエンフェノールノボラックのシアネートエステル、または1, 1-ビス(2, 6-ジメチル-4-シアナトフェニル)メタンから選ばれる、請求の範囲第1項に記載する組成物。

6. 前記マレイミド成分が、前記基本配合物の約10～99.8重量%の範囲であり、

前記ポリシアネートエステルモノマーが、前記基本配合物の89.8重量%までであり、そして

前記硬化触媒が、前記基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、

そして、全ての場合の重量%が、基本配合物の全成分の総重量に基づいている、請求の範囲第1項に記載する組成物。

7. 前記マレイミド成分が、前記基本配合物の約15～30重量%の範囲であり、

前記ポリシアネートエステルモノマーが、前記基本配合物の約65～84.8重量%の範囲であり、そして

前記硬化触媒が、前記基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、

そして、全ての場合の重量%が、基本配合物の全成分の総重量に基づいている、請求の範囲第1項に記載する組成物。

8. 前記マレイミド成分が、前記基本配合物の約95～約99.8重量%の範囲であり、

前記ポリシアネートエステルモノマーが存在せず、そして

前記硬化触媒が、前記基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、

そして、全ての場合の重量%が、基本配合物の全成分の総重量に基づいている、請求の範囲第1項に記載する組成物。

9. 前記マレイミド成分が、前記基本配合物の約15～40重量%の範囲であ

り、

前記ポリシアネートエステルモノマーが、前記基本配合物の約55～84.8重量%の範囲であり、そして

前記硬化触媒が、前記基本配合物の約0.2～約5重量%の範囲であり、

そして、全ての場合の重量%が、基本配合物の全成分の総重量に基づいている、請求の範囲第1項に記載する組成物。

10. 前記マレイミド成分が、前記基本配合物の約95～約99重量%の範囲であり、

前記ポリシアネートエステルモノマーが存在せず、そして

前記硬化触媒が、前記基本配合物の約1～約5重量%の範囲であり、

そして、全ての場合の重量%が、基本配合物の全成分の総重量に基づいている、請求の範囲第1項に記載する組成物。

11. 所望により用いる希釈剤が、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、N-メチルピロリドン、トルエン、キシレン、塩化メチレン、テトラヒドロフラン、グリコールエーテル、メチルエチルケトン、エチレングリコールのモノアルキルまたはジアルキルエーテル、ポリエチレングリコール、プロピレングリコールまたはポリプロピレングリコールから選ばれる、請求の範囲第1項に記載する組成物。

12. 前記硬化触媒が、フリーラジカル開始剤、カチオン性触媒または遷移金属触媒である、請求の範囲第1項に記載する組成物。

13. フリーラジカル開始剤が、ペルオキシドまたはアゾ化合物から選ばれる、請求の範囲第12項に記載する組成物。

14. 前記カチオン性触媒が、オニウム塩、ヨードニウム塩またはスルホニウム塩から選ばれる、請求の範囲第12項に記載する組成物。

15. 前記遷移金属触媒が、キレートまたは石鹸の形態のニッケル、銅またはコバルトから選ばれる、請求の範囲第12項に記載する組成物。

16. カップリング剤が、珪酸エステル、アクリル酸金属塩、チタネートまたは共重合性基とキレート配位子を含有する化合物から選ばれる、請求の範囲第1項

に記載する組成物。

17. 請求の範囲第1項に記載する熱硬化性樹脂組成物の硬化した一部分により、第2の物品に永久的に接着された第1の物品を含む組立品。

18. 前記第1の物品と前記第2の物品が、積層回路基板の別々の層である、請求の範囲第17項に記載する組立品。

19. 表面に付着させたはんだマスクを有し、そして該はんだマスクが請求の範囲第1項に記載する組成物から作成された、回路基板を含む物品。

20. パッケージの各要素に対して、請求の範囲第1項に記載するマレイミドベースの接着組成物を使用することを含む、改良された非気密電子パッケージ。

21. 請求の範囲第1項に記載する組成物の一部分に封入された電子部品を含む物品。

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/US97/14568

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC(6) : Please See Extra Sheet.

US CL : Please See Extra Sheet.

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

U.S. : 156/307.3; 428/209, 229, 447; 525/421, 422, 423, 424; 526/262; 528/422; 548/521, 522.

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAS ONLINE

search terms: maleimide; composite#

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X — Y	US 5,314,513 A (MILLER ET AL) 24 May 1994 (24-05-94), column 7, lines 6-10; column 14, lines 22-40; column 17, lines 61-68; column 19, lines 7-13, column 2, lines 41-46.	1-8, 10, 12-15 19-23 ----- 9, 11
X	US 5,405,686 A (PORTELLI ET AL) 11 April 1995 (11-04-95), column 4, lines 11-15; column 5, lines 50-53; column 8, lines 5-7 and 25-27.	1-4, 7, 17, 18
Y	US 4,876,153 A (THORFINNSEN ET AL) 24 October 1989 (24-10-89), column 2, lines 50-60; column 3, lines 4-6 and 35-36; column 4, lines 1-5, 9-11 and 28-32.	1, 3, 7-9, 11, 13, 19, 20, 22, 23

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"B" earlier document published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"Z"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

30 OCTOBER 1997

Date of mailing of the international search report

28 NOV 1997

Name and mailing address of the ISA/US  
Commissioner of Patents and Trademarks  
Box PCT  
Washington, D.C. 20231

Facsimile No. (703) 305-3230

Authorized officer

JOHN R. HARDEE

Telephone No. (703) 308-0661

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)\*



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/US97/14568

## Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of Item 1 of first sheet)

This international report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of Item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

1-23

## Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/US97/14568

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER:  
IPC (6):

B32B 3/00, 9/04; C07D 207/452; C08F 22/40, 283/04; C08G 73/00; C09J 5/02; D03D 3/00.

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER:  
US CL :

156/307.3; 428/209, 229, 447; 525/421, 422, 423, 424; 526/262; 528/422; 548/521, 522.

---

フロントページの続き

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP(GH, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, HU, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU